

(様式第5号)

実施課題名 XPS、NEXAFS を用いた超ナノ微結晶ダイヤモンド膜
のフォトキャリアライフタイムの決定因子に対する構造の評価
English Structural Evaluation of Photocarrier Lifetime in Ultrananocrystalline
Diamond Film by XPS and NEXAFS

花田尊徳、エギザ モハメド、竹市悟志、吉武剛

Takanori Hanada, Mohamed Egiza, Satoshi Takeichiu, and Tsuyoshi Yoshitake

九州大学大学院総合理工学府量子プロセス理工学専攻

Department of Applied Science for Electronics and Materials, Kyushu University

- ※1 先端創生利用（長期タイプ）課題は、実施課題名の末尾に期を表す（Ⅰ）、（Ⅱ）、（Ⅲ）を追記してください。
- ※2 利用情報の公開が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後2年以内に研究成果公開〔論文（査読付）の発表又は研究センターの研究成果公報で公表〕が必要です（トライアル利用を除く）。
- ※3 実験に参加された機関を全てご記載ください。
- ※4 共著者には実験参加者をご記載ください（各実験参加機関より1人以上）。

1. 概要（注：結論を含めて下さい）

超ナノ微結晶ダイヤモンド・水素化アモルファスカーボン混相薄膜は可視光領域から紫外領域における吸収係数の高さから光電変換素子への応用が期待されている。光電変換素子の機能を決定づける重要なファクターの一つとして少数キャリア寿命が挙げられるが、 μ -PCD法によって測定される少数キャリア寿命とNEXAFSによる構成元素比率の測定によりそれぞれの因果関係を明らかにすることが今回の実験結果から期待できる。今回の実験結果から薄膜が窒化することでC-NおよびC=N結合が生成され、少数キャリア寿命が減少することが確認できた。

(English)

Ultrananocrystalline diamond/hydrogenated amorphous carbon composite films are expected to be applied to photovoltaics due to their so large absorption coefficient ranging from visible to ultraviolet area. Minority-carrier lifetime is one of the important factors in the function of photovoltaics. In this experiment we try to clear the relationships between the minority-carrier-lifetime and the ratio of atoms comprising the films, which is measured by μ -PCD method and NEXAFS respectively. We could successfully confirm the creation of C-N and C=N bonds in the films owing to nitridization and decrease of minority-carrier lifetimes.

2. 背景と目的

超ナノ微結晶ダイヤモンド・水素化アモルファスカーボン混相（UNCD）膜は、無数の粒径10 nm以下のダイヤモンド微結晶がアモルファスカーボンマトリックスに内在する構造を持ち、(i)極めて滑らかな膜表面、(ii) DLCに比べ高温安定性、(iii)紫外領域において大きな光吸収係数を有するなど物理的・電氣的に興味深い材料である¹。これまで我々はUNCD膜のBドーピングによるp型化、Nドーピングによるn型化を実現し、シンクロトロン光を用いたNEXAFS、XPS、XRD測定を基調とした解析で、膜中の化学結合状態や構造評価を行ってきた²。ナノレベルで複雑な構造形式を有

する UNCD 膜に対してはシンクロトロン光が格段に有効であり、伝導型発現の起源や不純物元素の結合状態など重要な物理特性が明らかにされつつある段階にきている。

太陽電池は少数キャリアが発電に寄与するデバイスである。このため、少数キャリアが多数キャリアと再結合して失われるまでのライフタイムが重要な意味を持つ。μ-PCD 法により UNCD 膜に対して少数キャリアのフォトキャリアライフタイム測定を行った。水素雰囲気下で成膜した UNCD 膜のライフタイムは、真空下で成膜した場合のライフタイムと比較して 50 倍向上した。水素雰囲気下で成膜したアンドープ UNCD 膜のライフタイムと比較して、B ドープ UNCD 膜のライフタイムはさらに 2 倍となり、一方で N ドープの UNCD 膜のライフタイムは 1/10 となった。この起源を明らかにするには、UNCD 膜にドーパされた B および N 原子がどのような結合様式で膜中に存在するのか解明することがキーとなる。具体的には NEXAFS、XPS を用いた評価でドーパントである B および N が膜中でどのような化学結合状態をとっているのかを主軸に解析を行う。

3. 実験内容 (試料、実験方法、解析方法の説明)

今回用いた薄膜は同軸型アークプラズマ堆積法によって作製した。すべての薄膜は絶縁シリコン基板の上に堆積し、ホウ素、窒素元素をドーピングすることにより p 型化、n 型化させた。ホウ素はカーボンターゲットに含まれ、それぞれ 1、5、10 at.%、また窒素は注入ガスとして水素と同時にアークプラズマ堆積時に 10:3、5:5、5:7.5 の割合で注入することで作製した。作製条件はベース圧力を 10^{-4} Pa 以下、Radio Frequency を 5Hz、同軸型ガンと基板間の距離を 15mm、ガン電源のキャパシタンスを $720\mu\text{F}$ 、電圧を 100 V に設定した。

4. 実験結果と考察

Fig. 2 に、今回測定を行ったアンドープ、および窒素ドーパ 3at. %、8at. % の NEXAFS スペクトラを示す。窒素ドーピングを行うことで薄膜が窒化し、C-N および C=N 結合が形成されることが確認できた。窒化により形成された C-N、C=N が少数キャリアをトラップしている可能性がある。今後より詳細な検討が必要である。

5. 今後の課題

今後はより詳細な傾向を探るために、作製条件の異なる同種の薄膜においても測定を行う必要がある。また p 型薄膜の調査も引き続き行っていく予定である。

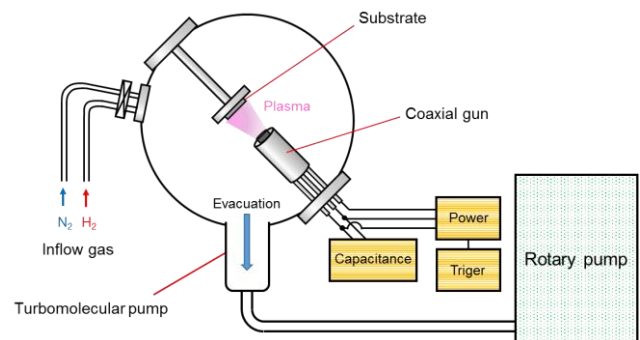


Fig 1. 同軸型アークプラズマ堆積法の模式図

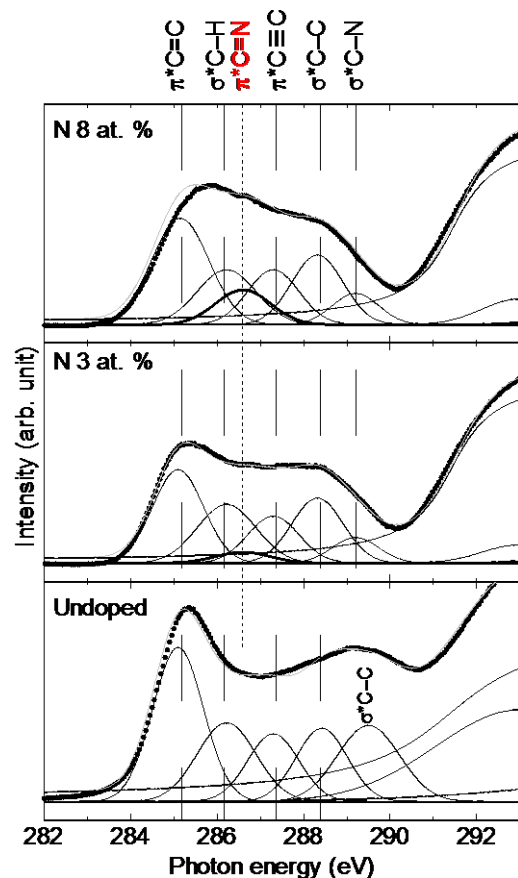


Fig 2. C-K edge NEXAFS spectra of undoped, N 3 at. % and N 8 at. % doped films.

6. 参考文献

[1] "Carrier Transport and Photodetection in Heterojunction Photodiodes Comprising n-Type Silicon and p-Type Ultrananocrystalline Diamond/Hydrogenated Amorphous Carbon Composite Films"

S. Ohmagari, T. Hanada, Y. Katamune, S. Al-Riyami, and T. Yoshitake

Jpn. J. Appl. Phys. 53 (2014) 050307.

[2] "Optical and Electrical Properties of Boron-doped Ultrananocrystalline Diamond/Hydrogenated Amorphous Carbon Composite Films Prepared by Coaxial Arc Plasma Deposition"

Y Katamune and T Yoshitake

Proceedings of The 15th Cross Straits Symposium on Materials, Energy and Environment Science and Technology (2013) pp. 70-71.

7. 論文発表・特許 (注：本課題に関連するこれまでの代表的な成果)

なし

8. キーワード (注：試料及び実験方法を特定する用語を2～3)

超ナノ微結晶ダイヤモンド、同軸型アークプラズマ堆積法

9. 研究成果公開について (注：※2に記載した研究成果の公開について①と②のうち該当しない方を消してください。また、論文(査読付)発表と研究センターへの報告、または研究成果公報への原稿提出時期を記入してください(2017年度実施課題は2019年度末が期限となります)。

長期タイプ課題は、ご利用の最終期の利用報告書にご記入ください。

① 論文(査読付)発表の報告

(報告時期：平成30年3月)